FATENT COOPERATION TREATY

	From th	ne INTERNATIONAL BU	JREAU
PCT	To:		
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 07 July 2000 (07.07.00)		ELENAC GMBH Industriepark Höchst Patentstelle Gebäude E413 D-65926 Frankfurt/Main ALLEMAGNE	
Applicant's or agent's file reference		194000T4NT NOT	FIGATION
0775/00009		IMPORTANT NOTI	FICATION
International application No. PCT/EP99/07837	1	nal filing date (day/month/ye October 1999 (15.10.99)	ar)
1. The following indications appeared on record concerning:			
X the applicant X the inventor	the agen	t the commo	n representative
Name and Address		State of Nationality	State of Residence
KÄMMERER, Michael Kastanienweg 38		DE Telephone No.	DE
D-50389 Wesseling Germany		Telephone No.	
Germany		Facsimile No.	
	•	Teleprinter No.	
The International Bureau hereby notifies the applicant that the second control of t	he following	change has been recorded o	oncerning:
the person the name X the add	Ī	the nationality	the residence
Name and Address		State of Nationality	State of Residence
KÄMMERER, Michael	:	DE	DE
Karl-Dillinger-Strasse 41 D-67071 Ludwigshafen		Telephone No.	
Germany		Facsimile No.	
		Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:			
4. A copy of this notification has been sent to:			
X the receiving Office		the designated Offices of	concerned
the International Searching Authority	Ī	X the elected Offices cond	erned
X the International Preliminary Examining Authority		other:	
	Authorized	officer	
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes		G. Bähr	
1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740 14 35	Telephone	No : (41-22) 338 83 38	

	·	
		•

I..TENT COOPERATION TREA.Y

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422)

ISENBRUCK, Günter Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck Theodor-Heuss-Anlage 12 D-68165 Mannheim

Day of the state o	ALLEMAGNE
Date of mailing (day/month/year)	1
16 November 1999 (16.11.99)	
Applicant's or agent's file reference	
NAE19980591P	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No.	International filing date (day/month/year)
PCT/EP99/07837	15 October 1999 (15.10.99)
1. The following indications appeared on record concerning:	
the applicant the inventor	X the agent the common representative
Name and Address	State of Nationality State of Residence
ISENBRUCK, Günter	
Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck	Telephone No.
Theodor-Heuss-Anlage 12	
D-68165 Mannheim Germany	Facsimile No.
	Teleprinter No.
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that	the following change has been recorded concerning:
	ddress the nationality the residence
	the residence
Name and Address	State of Nationality State of Residence
	Telephone No.
	0621 42271 0
	Facsimile No. 0621 42271 31
	Teleprinter No.
	releptinter No.
3. Further observations, if necessary:	
The above-mentioned agent has renounced his	appointment.
4. A copy of this notification has been sent to:	
X the receiving Office	X the designated Offices concerned
X the International Searching Authority	
	the elected Offices concerned
the International Preliminary Examining Authority	other:
The state of the s	Authorized officer
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes	
1211 Geneva 20, Switzerland	G. Bähr
acsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338 83 38

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

		4	
	÷		

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
PCT	To:
NOTIFICATION OF ELECTION	Assistant Commissioner for Patents
(PCT Rule 61.2)	United States Patent and Trademark Office Box PCT
	Washington, D.C.20231 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
Date of mailing (day/month/year)	
07 June 2000 (07.06.00)	in its capacity as elected Office
International application No. PCT/EP99/07837	Applicant's or agent's file reference 0775/00009
International filing date (day/month/year)	Priority date (day/month/year)
15 October 1999 (15.10.99)	15 October 1998 (15.10.98)
Applicant	-
DE LANGE, Paulus et al	
1. The designated Office is hereby notified of its election ma X in the demand filed with the International Prelimina	ry Examining Authority on: (13.04.00) rnational Bureau on:
The International Bureau of WIPO	Authorized officer
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Kiwa Mpay
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338 83.38

		*
		i.i.

. TENT COOPERATION TREATY

		From the INTERNATIONAL BUREAU		
PCT	To:			
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 01 February 2001 (01.02.01)	Indu Pate Geb D-68	NAC GMBH Istriepark Höchst Intstelle äude E413 5926 Frankfurt/Main EMAGNE		
Applicant's or agent's file reference				
0775/00009		IMPORTANT NO	TIFICATION	
International application No. PCT/EP99/07837		onal filing date (day/month/ October 1999 (15.10.98	•	
1. The following indications appeared on record concerning:				
X the applicant the inventor	the ager	the comm	non representative	
Name and Address ELENAC GMBH D-77694 Kehl Germany		State of Nationality DE Telephone No.	State of Residence DE	
		069 305 6079 Facsimile No.		
		069 3056 27441		
		Teleprinter No.		
The International Bureau hereby notifies the applicant that the person	the following	change has been recorded the nationality	concerning: the residence	
Name and Address		State of Nationality	State of Residence	
BASELL POLYOLEFINE GMBH D-77694 Kehl		DE	DE	
Germany		Telephone No.		
	ŀ	069 305 6079 Facsimile No.		
		069 3056 27441		
	ŀ	Teleprinter No.		
3. Further observations, if necessary:				
A Accountable and a second				
4. A copy of this notification has been sent to:		-		
X the receiving Office		the designated Offices	concerned	
the International Searching Authority)	the elected Offices cond	perned	
the International Preliminary Examining Authority		other:		
The later of 12	Authorized o	fficer		
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland		G, Bähr		
acsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone N	o.: (41-22) 338.83.38	ľ	

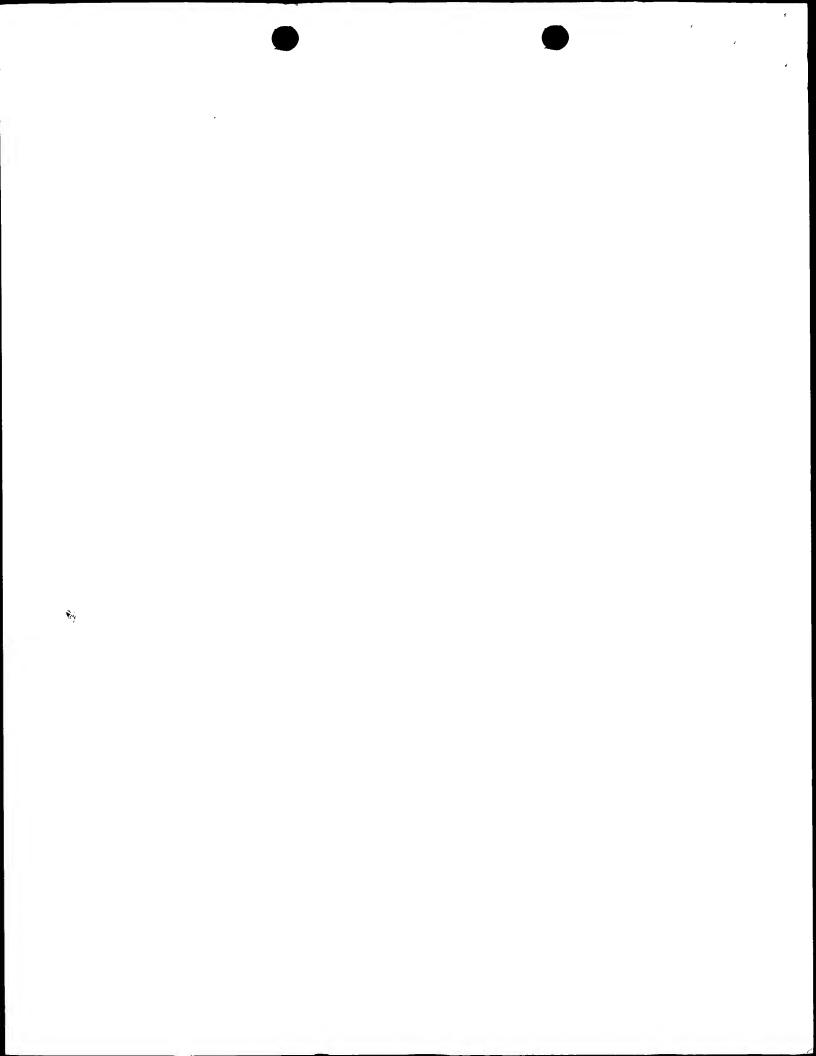
PATENT COOPERATION TREATY

PCT

Translation of 163355 INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0775/00009	FOR FURTHER AC	TION	cation of Transmittal of International Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No.	International filing date	e (day/month/year)	Priority date (day/month/year)
PCT/EP99/07837	15 October 199	99 (15.10.99)	15 October 1998 (15.10.98)
International Patent Classification (IPC) or n B01J 8/00	ational classification and	I IPC	
Applicant	BASELL POLYO	LEFINE GMBH	
Authority and is transmitted to the a 2. This REPORT consists of a total of This report is also accompanies amended and are the beginning (see Rule 70.16 and Section	8 sheets, nied by ANNEXES, i.e., asis for this report and/o 607 of the Administrati	including this cover s sheets of the descript r sheets containing re ve Instructions under	ion, claims and/or drawings which have extifications made before this Authority
These annexes consist of a t			
3. This report contains indications rela	•	ns:	
I Basis of the report			
II Priority			to the second se
III Non-establishmen	t of opinion with regard	to novelty, inventive	step and industrial applicability
IV Lack of unity of ir	ivention		
Reasoned stateme	nt under Article 35(2) wi anations supporting such	ith regard to novelty, statement	inventive step or industrial applicability;
VI Certain documents	s cited		170 2007
VII Certain defects in	the international applica	tion	9 5 11
VIII Certain observatio	ons on the international a	pplication	
Date of submission of the demand		Date of completion of	of this report
13 April 2000 (13.04	.00)	11 De	ecember 2000 (11.12.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP		Authorized officer	
Facsimile No.		Telephone No.	

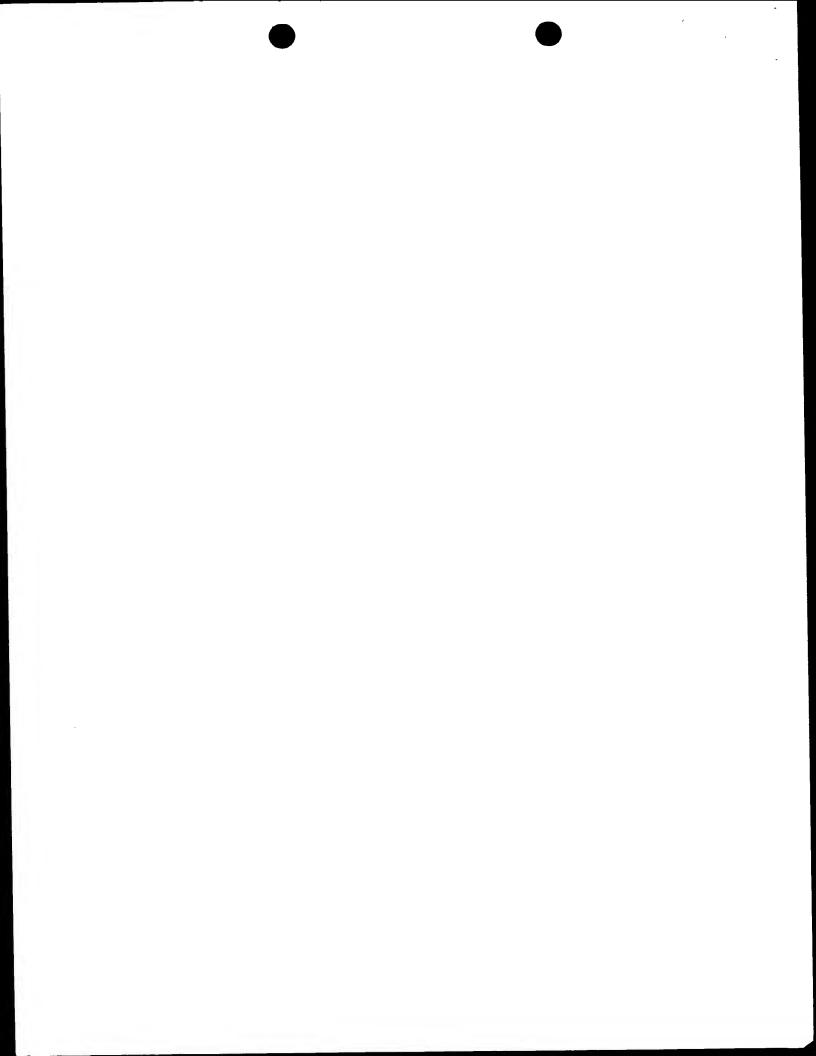


International application No.

ŧ

PCT/EP99/07837

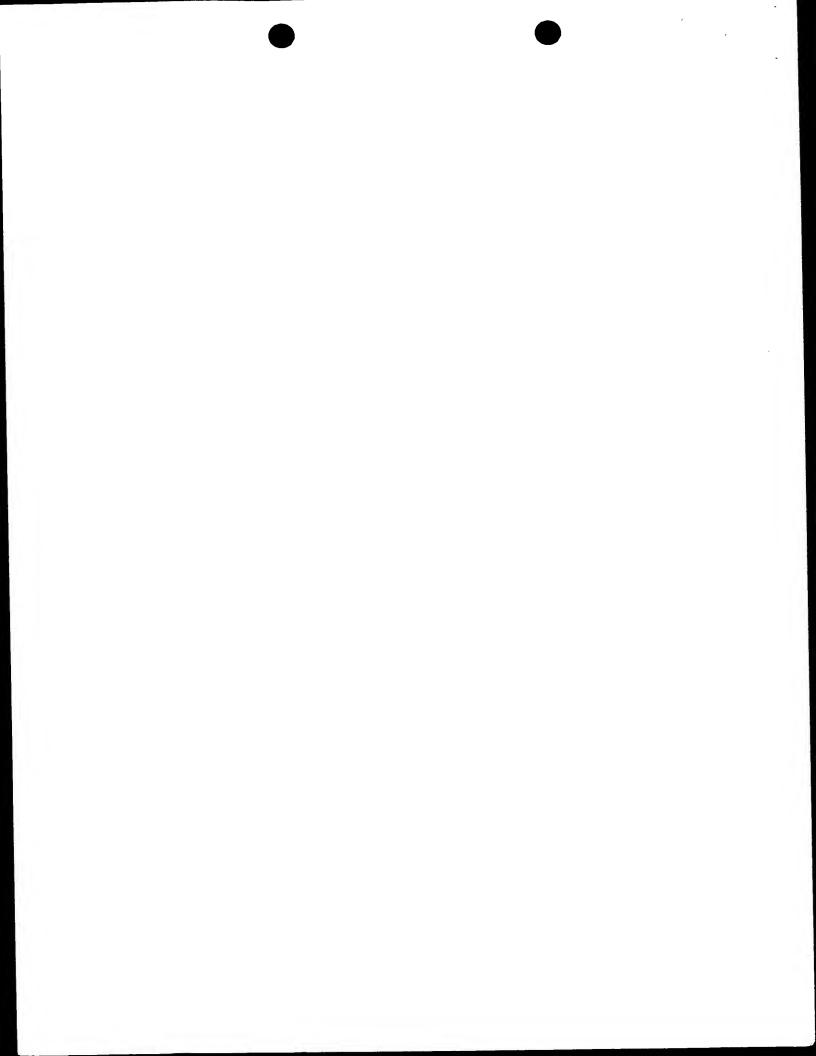
I. Basis of t	I. Basis of the report					
1. This repo	ort has been drawn of the last	on the basis of (Replacement she in this report as "originally file	neets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation additional are not annexed to the report since they do not contain amendments.):			
	the international	l application as originally file	d.			
	the description,	pages1-13	, as originally filed,			
		pages	, filed with the demand,			
		pages	, filed with the letter of,			
		pages	, filed with the letter of			
	the claims,	Nos	, as originally filed,			
		Nos.	, as amended under Article 19,			
		Nos.	, filed with the demand,			
		Nos. 1-11	, filed with the letter of14 November 2000 (14.11.2000) ,			
			, filed with the letter of			
\boxtimes	the drawings,	sheets/fig1/2,2/2	, as originally filed,			
		sheets/fig	, filed with the demand,			
		sheets/fig	, filed with the letter of,			
		sheets/fig	, filed with the letter of			
2. The amen	dments have resulte	ed in the cancellation of:				
	the description,	pages	_			
	the claims,	Nos	· 			
	the drawings,	sheets/fig				
3. L Thi to g	s report has been es so beyond the disclo	stablished as if (some of) the a osure as filed, as indicated in	amendments had not been made, since they have been considered the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).			
4. Additional	l observations, if ne	ecessary:				



International application No.

PCT/EP99/07837

Lack of unity of invention	_
n response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:	
restricted the claims.	
paid additional fees.	
paid additional fees under protest.	
neither restricted nor paid additional fees.	
This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.	
his Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is	
complied with.	
not complied with for the following reasons:	
See annex	
	į
onsequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination establishing this report:	
all parts.	
the parts relating to claims Nos	



International application No. PCT/EP 99/07837

Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV. 3

The subject matter of the application lacks unity of invention according to PCT Rule 13.1.

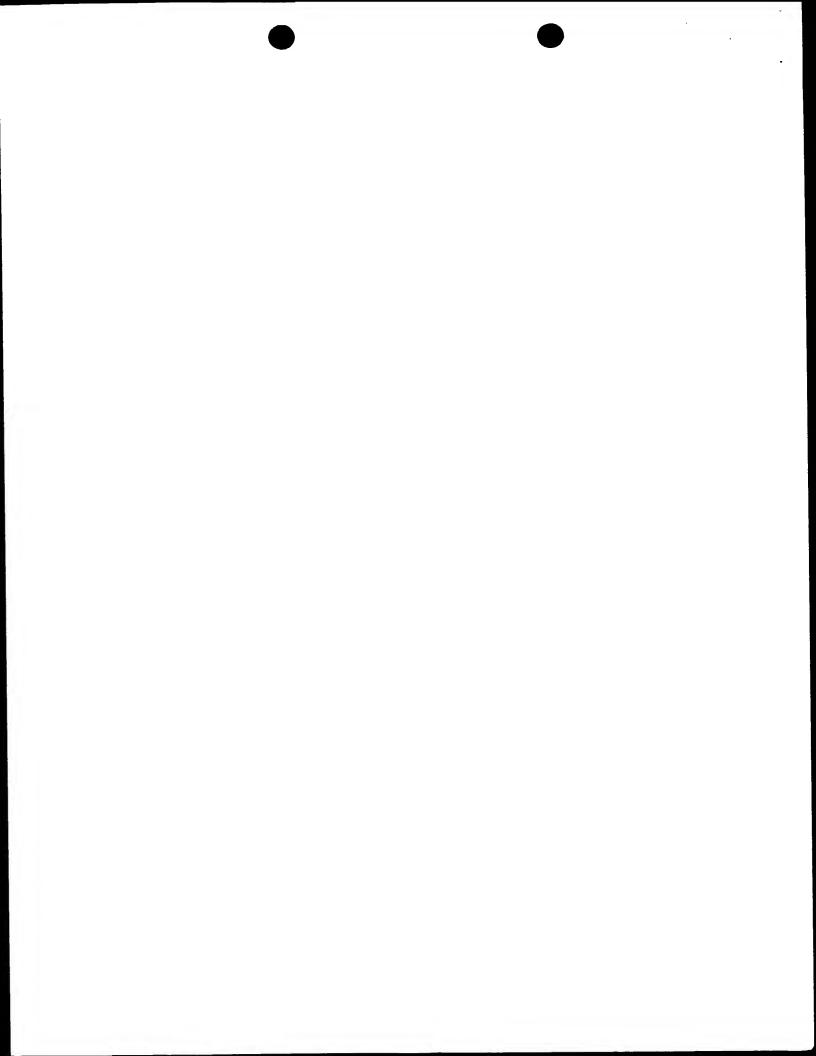
The various invention/groups of inventions are:

- a) a process for treating catalysts and a reactor for implementing this process (Claims 1-10);
- b) polyolefins prepared using catalysts treated according to the process described in Claim 1 (Claim 11).

The catalyst forms the sole concept that could link independent Claims 1, 6 and 11. The novelty and inventive step of this concept cannot at present be discerned, regeneration of catalysts and their use in various catalytic processes being generally known per se. However, neither the application nor the letter of 29 February 2000 have demonstrated why a catalyst treated as per Claim 1 should be novel and involve an inventive step.

The applicant was requested in writing on 13 July 2000 either to inform the authority which invention should be addressed in further examination of this application and correspondingly to restrict the application or to pay an additional examination fee. In his letter of 25 July 2000 the applicant deleted Claims 7 and 13 as filed, which had been objected to owing to lack of unity of invention.

Claim 13 as filed was resubmitted in conjunction with the letter of 14 November 2000 as new Claim 11. With respect to resubmission of this claim, the applicant referred to



Supplemental Box

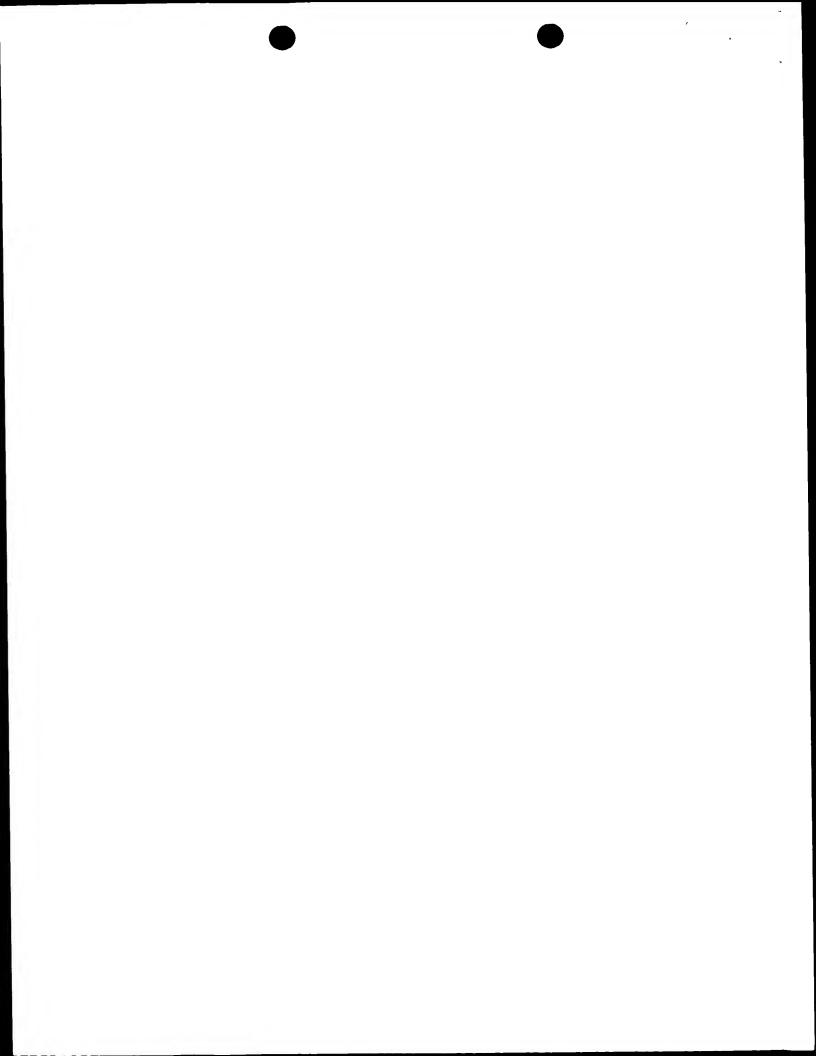
(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: IV.3

Decision W 16/00 of the Board of Appeal.

The Examining Authority does not need to consider this decision, which pertains exclusively to the reasons put forward by the Searching Authority, in the present case. The Board of Appeal has in no sense established unity of invention. The reasons put forward by the Searching Authority were not challenged in this decision, the objection being upheld because the applicant did not state an opinion on the novelty and inventive step of the catalysts treated according to the process described in Claim 1.

The Examining Authority will therefore make no comment on the subject matter of Claim 11.



International application No.
PCT/EP 99/07837

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims		YES
		Claims	1-10	NO
	Inventive step (IS)	Claims		YES
		Claims	1-10	NO
	Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
		Claims		NO NO

2. Citations and explanations

1. This report makes reference to the following documents:

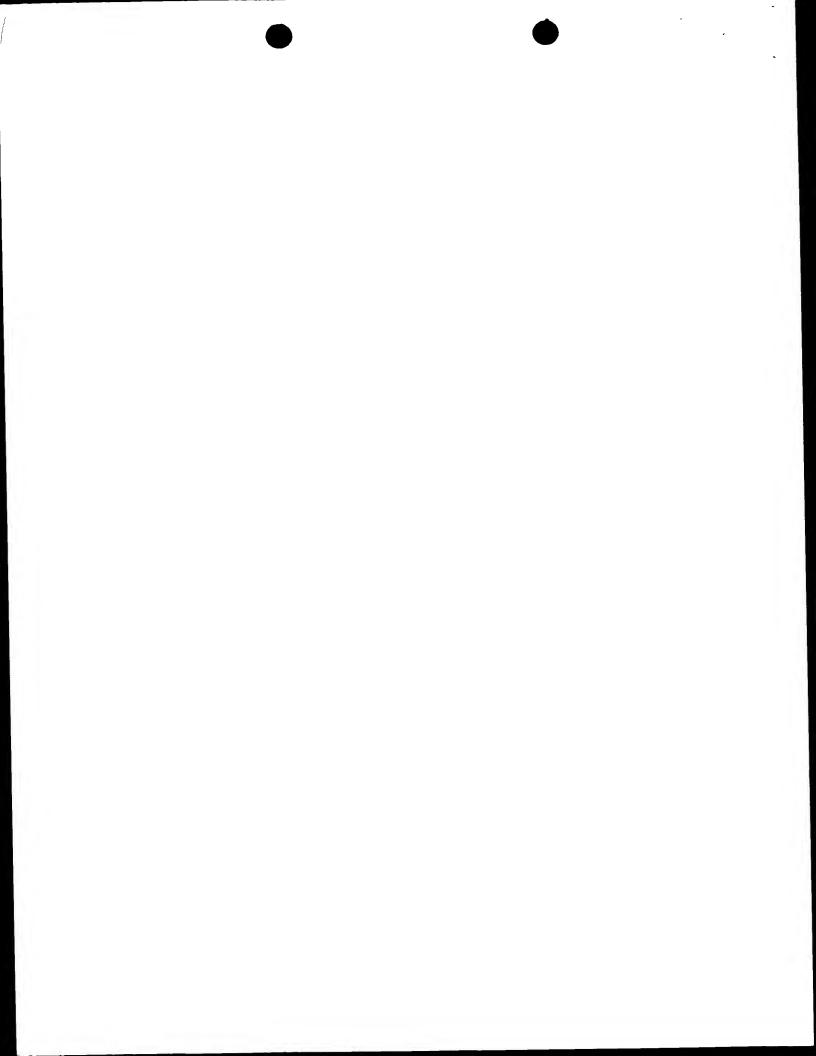
D1: US-A-4 038 038 (BONN DORRANCE P, STRICKLAND JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 26 July 1977 (1977-07-26)

D2: US-A-4 518 750 (GOVONI GABRIELE ET AL.) 21 May 1985 (1985-05-21)

D3: EP-A-0 101 893 (BASF AG) 7 March 1984 (1984-03-07)

D4: US-A-4 229 608 (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21 October 1980 (1980-10-21)

- The subject matter of Claims 1-10 is not novel within the meaning of PCT Article 33(1) and (2).
- 3. The subject matter of Claims 1-10 is not novel in light of D1. Statement of a later use of the treated catalyst is not a technical feature of the process as per Claims 1-5 of the application and therefore does not delimit the claimed subject matter over the prior art. The claim relates to the treatment of pure catalyst carriers.



D1 discloses a reactor as per Claim 6 of the application wherein catalysts as per Claim 1 are regenerated. The reactor floor is conical in form. See Figure 1 and column 1, line 60 - column 5, line 55.

The device comprises two cyclones.

Supplementary gases are introduced (Figure 11: 111 and 112, column 4, line 26 - column 5, line 17).

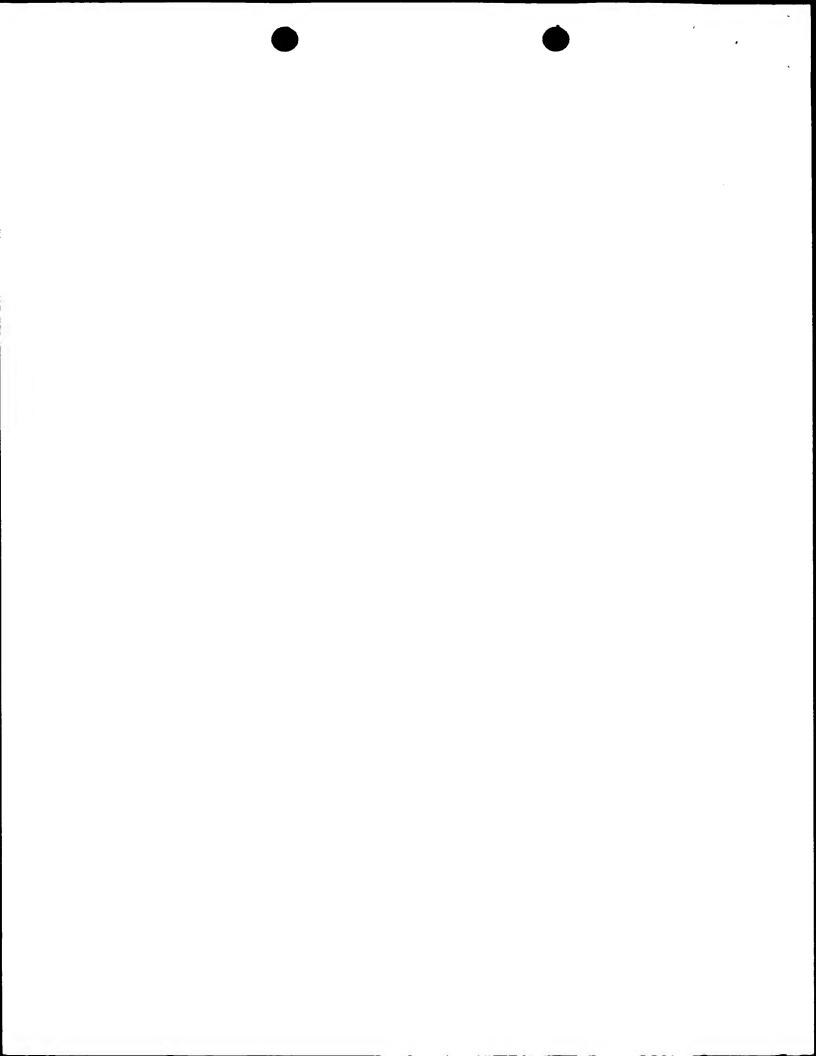
The cone angle is between 30 and 45° (column 3, lines 4-11).

Therefore, the subject matter of Claims 1-10 is not novel.

4. The subject matter of Claims 1, 2 and 6-8 also lacks novelty in light of D2 (Figures 1 and 3). The separating element is designated 14 (see also column 3, lines 9-17, and column 6, line 17).

A cyclone and the separating element in D2 fulfil prima facie the same function. A person skilled in the art would therefore consider incorporation of this cyclone in the reactor described in D2 a routine design step in order to separate gases and particles. The subject matter of Claim 10 therefore fails to involve an inventive step versus D2 (PCT Article 33(1) and (3)).

5. D3 discloses a reactor as per Claims 6-8 and a process as per Claims 1 and 2 (drawing and page 2, line 11 - page 3, line 3, and page 3, lines 16-18 and 29-31). Gases are continuously fed in and



nternational application No.
PCT/EP 99/07837

withdrawn (page 5, lines 24-30). The entrained solid particles are separated.

ŧ

Use of a cyclone may also be considered a routine design step in this case. The subject matter of Claim 10 fails to involve an inventive step *versus* D3 (PCT Article 33(1) and (3)).



VIII. Certain observations on the international application

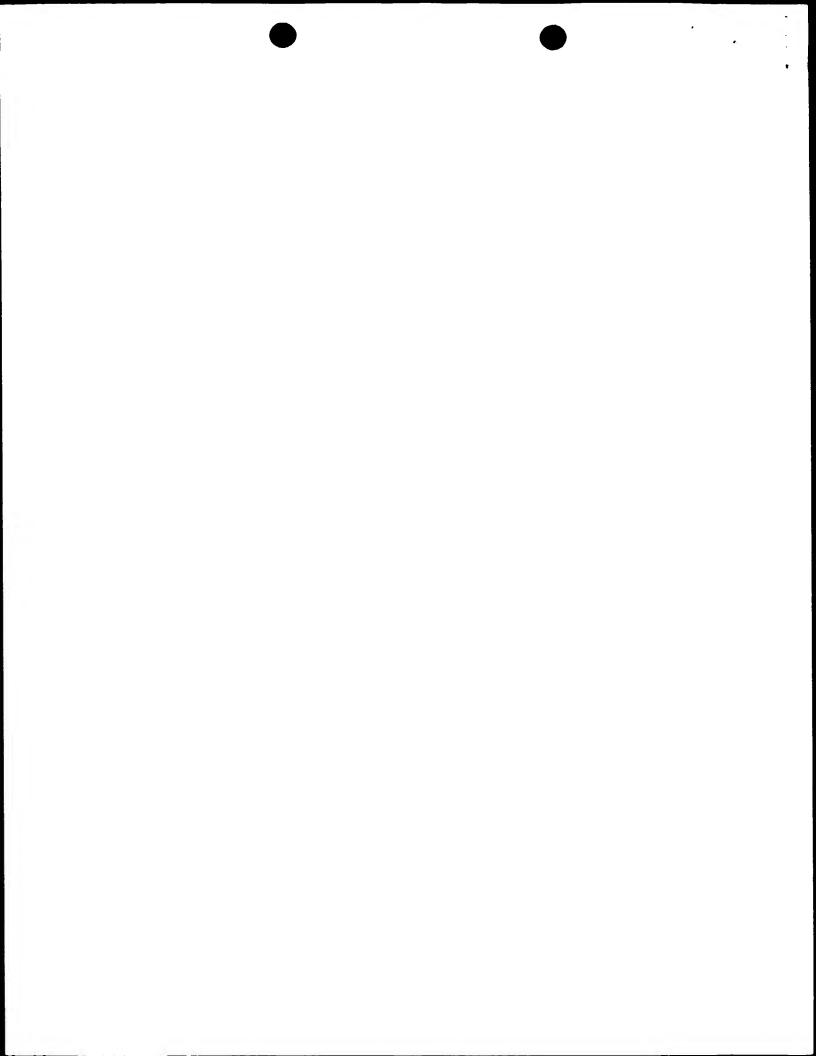
The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The term "treatment" used in Claim 1 is vague and unclear and leaves the reader in doubt as to the significance of the relevant technical feature. Consequently, the definition of the subject matter of this claim lacks clarity and clear delimitation over the prior art is not possible (PCT Article 6).

In his letter of 14 November 2000 the applicant indicated several differences in discussing inventive step. These could not be considered, since they have not been incorporated in Claim 1.

2. Statement of a later use of the treated catalyst is not a technical feature of the process as per Claims 1-5 of the application. The intended restrictions therefore fail to emerge clearly from the claim, contrary to the requirements of PCT Article 6.

The definition of the catalysts (page 9, line 23 - page 10, line 2) is too general to permit delimitation over the prior art. The indicated carrier materials may also be used for cracking catalysts.



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM **GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

REC'D 1 3 DEC 2000

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

			(Artikel 36 un	id Rege	el 70 PC	T)	T/
Aktenzeic	hen d	es Anmelders oder Anwalts			siehe Mitteil	lung über die Übersendung d	16
0775/00	009		WEITERES VOR	GEHEN	vorläufigen	Prüfungsbericht (Formblatt F	PCT/IPEA/416)
1		Aktenzeichen	Internationales Anmel	dedatum(Ta	g/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Mona	
PCT/EP	99/0	7837	15/10/1999			15/10/1998	- <i></i> -
B01J8/0	1816 Pa	atentklassification (IPK) oder	r nationale Klassifikation u	ind IPK			
ELENAC	GM	BH et al.					
20110	1000	ernationale vorläufige Prürstellt und wird dem Anm RICHT umfaßt insgesam	leidei gemais Anikei 36	o ubermitte	eit.	nale vorläufigen Prüfung	beauftragte
⊠ A u B	lußer Ind/od Behör	dem liegen dem Bericht der Zeichnungen, die geä	ANLAGEN bei; dabei l ändert wurden und dies ichtigungen (siehe Reg	nandelt es sem Berich	sich um Blätt	ter mit Beschreibungen, / egen, und/oder Blätter m 607 der Verwaltungsrich	. 1 A
3. Diese	r Beri	icht enthält Angaben zu f	olgenden Punkten:				
ı	\boxtimes	Grundlage des Berichts	S				
II		Priorität					
Ш		Keine Erstellung eines	Gutachtens über Neuh	eit, erfinde	rische Tätigk	eit und gewerbliche Anw	endbarkeit
IV	×	Mangeinde Einheitlichke	eit der Erfindung				
V	\boxtimes	Begründete Feststellung gewerbliche Anwendba	g nach Artikel 35(2) hir rkeit: Unterlagen und F	nsichtlich d Erklärunger	er Neuheit, d	ler erfinderische Tätigkeit	t und der
VI		Bestimmte angeführte L	Interlagen	mararigo	Tzar Oldizari	ig dieser Fesistellung	
VII		Bestimmte Mängel der i		lung			
VIII	☒	Bestimmte Bemerkunge	en zur internationalen A	Anmeldung	l		
Datum der E	inreic	hung des Antrags		Datum de	r Fertigstellung	dieses Berichts	
13/04/200				11.12.200	o		
Prüfung beau	uftragt	schrift der mit der internation en Behörde: päisches Patentamt	alen vorläufigen	Bevollmäd	htigter Bediens	steter	STOP GOVES MATERIALS

Gosselin, D

Tel. Nr. +49 89 2399 8400

Fax: +49 89 2399 - 4465

Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d

D-80298 München

		1, 114
		1 41
		A 11
		4.1
		641
10.7		
10.7		
J* \		
ř –		
177		

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

l. Grunc	llage	des	Berichts
----------	-------	-----	-----------------

1	Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.): Beschreibung, Seiten:						
	1-	13	ursprüngliche Fassung				
	Pa	tentansprüche, Nr	:				
	1-	11	eingegangen am	15/11/2000	mit Schreiben vom	14/11/2000	
	Ze	ichnungen, Blätter	:			-	
	1/2	2,2/2	ursprüngliche Fassung				
2.	 Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist. 						
Die Bestandteile standen Behörde in der Sprache: , zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um						Sprache eingereicht;	
		die Sprache der Ü Regel 23.1(b)).	bersetzung, die für die Zweck	e der internation	nalen Recherche eing	ereicht worden ist (nach	
		die Veröffentlichur	ngssprache der internationaler	Anmeldung (n	ach Regel 48.3(b)).		
		die Sprache der Ü ist (nach Regel 55	bersetzung, die für die Zweck .2 und/oder 55.3).	e der internatior	nalen vorläufigen Prüf	ung eingereicht worden	
3.	Hin inte	sichtlich der in der i rnationale vorläufig	nternationalen Anmeldung offe e Prüfung auf der Grundlage o	enbarten Nucle les Sequenzpro	otid- und/oder Amine otokolls durchgeführt v	osäuresequenz ist die vorden, das:	
		in der international	en Anmeldung in schriftlicher	Form enthalten	ist.		
			internationalen Anmeldung in			worden ist.	
			achträglich in schriftlicher Forn				
			achträglich in computerlesbare				
		Die Erklärung, das	s das nachträglich eingereicht It der internationalen Anmeldu	e schriftliche Se	equenzprotokoll nicht	über den wurde vorgelegt.	
		Die Erklärung, das	s die in computerlesbarer Forr entsprechen, wurde vorgelegt.	n erfassten Info			
4.	Auf	grund der Änderung	en sind folgende Unterlagen f	ortgefallen:			

	-
•	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

		Beschreibung,	Seiten:		
		Ansprüche, Zeichnungen,	Nr.: Blatt:		
5. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese au angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprüngereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).					
		(Auf Ersatzblätter, di beizufügen).	e solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht		
6.	Etw	aige zusätzliche Bem	erkungen:		
IV	. Ma	ngelnde Einheitlichke	eit der Erfindung		
1.	Auf Ann	die Aufforderung zur l nelder:	Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren hat der		
		die Ansprüche einges	schränkt.		
		zusätzliche Gebührer	n entrichtet.		
		zusätzliche Gebührer	n unter Widerspruch entrichtet.		
	\boxtimes	weder die Ansprüche	eingeschränkt noch zusätzliche Gebühren entrichtet.		
2.		Die Behörde hat festg gemäß Regel 68.1 be zusätzlicher Gebühre	gestellt, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nicht erfüllt ist, und hat eschlossen, den Anmelder nicht zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung en aufzufordern.		
3.	Die und	Behörde ist der Auffas 13.3	ssung, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nach den Regeln 13.1, 13.2		
		erfüllt ist			
		aus folgenden Gründe siehe Beiblatt	en nicht erfüllt ist:		
4.	Dah inter	er wurde zur Erstellun nationalen Anmeldunç	g dieses Berichts eine internationale vorläufige Prüfung für folgende Teile der g durchgeführt:		
		alle Teile.	•		
	\boxtimes	die Teile, die sich auf	die Ansprüche Nr. 1-10 beziehen.		

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der

gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Formblatt PCT/IPEA/409 (Felder I-VIII, Blatt 2) (Januar 1994)

	•
	-
·	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/07837

1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-10

1-10

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-10

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken: siehe Beiblatt

			•
			•
d'a			

Zu Punkt IV

Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung

Der Gegenstand der Anmeldung ist nicht einheitlich gemäß Regel 13.1 PCT.

Die verschiedenen Erfindungen/Gruppen von Erfindungen sind:

- a) ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren und ein Reaktor zur Durchführung dieses Verfahren (Ansprüche 1-10).
- b) Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren, die gemäß dem Verfahren des Anspruchs 1 behandelten sind (Anspruch 11).

Der Katalysator bildet die einzige Idee, die die unabhängigen Ansprüche 1, 6 und 11 miteinander verbinden könnte. Die Neuheit und die erfinderische Tätigkeit dieser Idee ist zur Zeit nicht erkennbar. Das Regenerieren von Katalysatoren und deren Verwendung in verschiedenen katalytischen Verfahren ist als solche allgemein bekannt. Es wurde aber in der Anmeldung oder in Schreiben von 29.02.2000 nicht nachgewiesen, daß ein gemäß Anspruch 1 behandelter Katalysator neu und erfinderisch sein sollte.

Der Anmelder wurde mit Bescheid vom 13.07.200 aufgefordert entweder mitzuteilen, welche Erfindung dem weiteren Verfahren dieser Anmeldung zugrunde gelegt werden sollte, und die Anmeldung entsprechend zu beschränken, oder eine zusätzliche Prüfungsgebühr zu zahlen. Mit Schreiben vom 25.07.2000 hat der Anmelder die ursprünglich eingereichten und als nicht einheitlich beanstandeten Patentansprüche 7 und 13 herausgestrichen.

Mit Schreiben vom 14.11.2000 wurde der ursprüngliche Anspruch 13 als neuer Anspruch 11 wieder hinzugefügt. Der Anmelder hat sich für die Wiedereinführung dieses Anspruchs auf die Entscheidung W 16/00 der Beschwerdekammer berufen.

Die Prüfungsbehörde braucht in diesem Fall diese Entscheidung nicht zu berücksichtigen. Die Entscheidung betrifft ausschließlich die von der Recherchenbehörde vorgebrachten Begründung. Die Beschwerdekammer hat keinesfalls die Einheitlichkeit festgestellt. Die von der Prüfungsbehörde vorgebrachten

Begründung wurde in dieser Entscheidung nicht angefochten. Der Einwand wird aufrechterhalten, weil der Anmelder zur Neuheit und erfinderischer Tätigkeit der Katalysatoren, die gemäß dem Verfahren des Anspruchs 1 behandelten sind, nicht Stellung genommen hat.

Die Prüfungsbehörde wird deshalb zum Gegenstand des Anspruchs 11 nicht Stellung nehmen.

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(II) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- 1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:
 - D1: US-A-4 038 038 (BONN DORRANCE P,STRICKLAND JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 26. Juli 1977 (1977-07-26)
 - D2: US-A-4 518 750 (GOVONI GABRIELE ET AL) 21. Mai 1985 (1985-05-21)
 - D3: EP-A-0 101 893 (BASF AG) 7. März 1984 (1984-03-07)
 - D4: US-A-4 229 608 (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21. Oktober 1980 (1980-10-21)
- 2. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 ist nicht neu im Sinne des Artikel 33(1) und (2) EPÜ.
- 3. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 ist nicht neu im Hinblick auf D1. Die Angabe einer späteren Verwendung des behandelten Katalysators ist kein technisches Merkmal des Verfahrens gemäß Ansprüchen 1 bis 5 der Anmeldung und bittet daher keine Einschränkung gegenüber den Stand der Technik. Der Anspruch bezieht sich auch auf die Behandlung der reinen Katalysatorträger.

D1 offenbart einen Reaktor gemäß Anspruch 6 der Anmeldung. In diesem Reaktor

		_
		•
		•

werden Katalysator gemäß Anspruch 1 regeneriert. Der Reaktorboden ist konisch ausgebildet. Siehe Figur 1 und Spalte 1, Zeile 60 bis Spalte 5, Zeile 55.

Die Vorrichtung enthält zwei Zyklonen.

Zusätzliche Gase werden eingebracht (Figur 1: 111 und 112, Spalte 4, Zeile 26 bis Spalte 5, Zeile 17).

Der Konuswinkel liegt zwischen 30 bis 45° (Spalte 3, Zeilen 4-11).

Damit ist der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 10 nicht neu.

4. Der Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 6 bis 8 ist ferner auch nicht neu im Hinblick auf D2 (Figuren 1 und 3). Das Abschiedsorgan ist mit 14 gekennzeichnet (Siehe auch Spalte 3, Zeilen 9-17 und Spalte 6, Zeile 17).

Ein Zyklon und das Abschiedsorgan von D2 erfüllen prima facie die gleiche Funktion. Der Fachmann würde daher die Aufnahme dieses Zyklons in das in D2 beschriebenen Reaktor als eine übliche konstruktive Maßnahme zur Trennung von Gasen und Partikeln. Der Gegenstand des Anspruchs 10 beruht damit auf keiner erfinderischen Tätigkeit gegenüber D2 (Artikel 33(1) und (3) EPÜ).

5. D3 offenbart ein Reaktor gemäß Ansprüchen 6 bis 8 und ein Verfahren gemäß Ansprüchen 1 und 2 (Figur, Seite 2, Zeile 11 bis Seite 3, Zeile 3, Seite 3, Zeilen 16-18, Seite 3, Zeilen 29-31). Die Gase werden kontinuierlich eingespeist und abgezogen (Seite 5, Zeilen 24 bis 30). Die mitgerissenen Feststoffpartikel werden abgeschieden.

Die Anwendung eines Zyklons kann auch in diesem Fall als eine übliche konstruktive Maßnahme betrachtet werden. Der Gegenstand des Anspruchs 10 beruht auf keiner erfinderischen Tätigkeit gegenüber D3 (Artikel 33(1) und (3) EPÜ).

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

1. Die in dem Anspruch 1 benutzte Ausdruck "Behandlung" ist vage und unklar und läßt

den Leser über die Bedeutung des betreffenden technischen Merkmals im Ungewissen. Dies hat zur Folge, daß die Definition des Gegentands dieses Anspruchs nicht klar ist und daß eine deutliche Abgrenzung gegenüber des Standes der Technik (zum Beispiel D) nicht möglich ist (Artikel 6 PCT).

Mit Schreiben vom 14.11.2000 hat der Anmelder bei der Diskussion der erfinderischen Tätigkeit einige Unterschiede angegeben, die nicht Berücksicht werden könnten, da sie nicht im Anspruch 1 aufgenommen wurden.

2. Die Angabe einer späteren Verwendung der behandelten Katalysatoren ist kein technisches Merkmal des Verfahrens gemäß Ansprüchen 1 bis 5 der Anmeldung. Die beabsichtigten Einschränkungen gehen daher im Widerspruch zu den Erfordernissen des Artikels 6 PCT nicht klar aus dem Anspruch hervor.

Die Definition der Katalysatoren (Seite 9, Zeile 23 bis Seite 10, Zeile 2) ist zu allgemein, um eine Einschränkung gegenüber den Stand der Technik zu ermöglichen. Die genannten Trägermaterialien können auch für Crackkatalysatoren verwendet werden.

			r
	•		

5

10

20

Patentansprüche

- Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern für die Polymerisation von Olefinen durch
 - a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
 - b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - Behandlung der Katalysator- oder der Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
 - d) Entladung des Reaktors, wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden (2) eingesetzt wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zur
 Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein oder mehrere Abscheideorgane eingesetzt werden.
 - 3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheideorgan(e) ein oder mehrere Zyklone (4) verwendet werden.
 - 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Behandlung des Katalysators oder des Katalysatorträgers (Stufe c) eine Aktivierung und/oder eine Kalzinierung ist.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß auch Flüssigkeiten und/oder zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase in die Wirbelschicht eingebracht werden.
- 6. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 2 bis 5, enthaltend folgende Einrichtungen:
 - i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden (2),

5

10

15

- ii) ein unterhalb des Reaktorbodens (2) befindliches Rohr (9) zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang (7) verbunden ist,
- iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors (3) und
- iv) ein Abscheideorgan.
- 7. Reaktor nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß der sich nach unten verjüngende Reaktorboden (2) konisch ausgebildet ist.
- Reaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der konisch ausgebildete Reaktorboden (2) einen zwischen den beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° - 120°, bevorzugt von 30° - 80° aufweist.
 - Reaktor nach einem der Ansprüche 6 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Winkel β, der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs (7) und der Vertikalen nach oben gemessen wird, 20° - 70°, bevorzugt 30° - 60° beträgt.
- 20 10. Reaktor nach einem der Ansprüche 6 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheidorgan ein Zyklon eingesetzt wird.
 - 11. Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren oder Katalysatorträgern gemäß dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5.

· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7:

B01J 8/24, 8/00, 8/18

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 00/21655

A3

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

20. April 2000 (20.04.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

D-21244 Buchholz (DE).

PCT/EP99/07837

DE

(22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)

(81) Bestimmungsstaaten: CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,

LU, MC, NL, PT, SE).

(30) Prioritätsdaten:

198 47 647.7

15. Oktober 1998 (15.10.98)

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): ELENAC GMBH [DE/DE]; D-77694 Kehl (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DE LANGE, Paulus Hermann-Loens-Weg 5, D-67117 Lim-[NL/DE]; burgerhof (DE). SCHÖNFELDER, Hendrik [DE/DE]; D 3,3, D-68159 Mannheim (DE). KÄMMERER, Michael [DE/DE]; Kastanienweg 38, D-50389 Wesseling (DE). SIEBENHANDL, Hans, Wemer [DE/DE]; Am Kuckucksbusch 1, D-53913 Swisttal (DE). EVERTZ, Kaspar [DE/DE]; Stettiner Strasse 13, D-67105 Schifferstadt (DE). WIETFELDT-HALTENHOFF, Stefan [DE/DE]; Paul-Klee-Strasse 48, D-50374 Erftstadt (DE). WERTHER, Joachim [DE/DE]; Tostedter Weg 39,

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 13. Juli 2000 (13.07.00)

(54) Title: FLUIDIZED BED METHOD AND REACTOR FOR THE TREATMENT OF CATALYSTS AND CATALYST CARRIERS

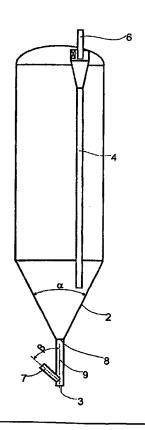
(54) Bezeichnung: WIRBELSCHICHTVERFAHREN UND REAKTOR ZUR BEHANDLUNG VON KATALYSATOREN UND KATALYSATORTRÄGERN

(57) Abstract

The invention relates to a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers by: a) introducing and distributing a gas in the lower section of a reactor containing a catalyst or catalyst carrier bulk material; b) forming a fluidized bed in the reactor, c) treating the particles in the fluidized bed while removing the fine particles and/or retaining the coarse particles by means of a separating organ and (d) discharging the reactor. To this end, a reactor bottom tapering downwards is used.

(57) Zusammenfassung

Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch: a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors; b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor, c) Behandlung der Partikeln in der Wirbelschicht, dabei Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln durch ein Abscheideorgan; und d) Entladung des Reaktors. Dabei wird ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
ΑT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	\mathbf{SZ}	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenl and		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	П.	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	$\mathbf{z}\mathbf{w}$	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Inte. onal Application No PCT/EP 99/07837

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 B01J8/24 B01J B01J8/00 B01J8/18 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B01J C08F Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. US 4 038 038 A (BUNN DORRANCE P, STRICKLAND X 1-3,5,6,JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 8-10,1226 July 1977 (1977-07-26) Υ column 1, line 60 -column 5, line 55 7,13 figure 1 US 4 518 750 A (GOVONI GABRIELE ET AL) χ 1,8-10 21 May 1985 (1985-05-21) column 4, line 1 - line 27 figure 1 EP 0 101 893 A (BASF AG) Α 1,8-10 7 March 1984 (1984-03-07) page 3, line 29 -page 4, line 12 claims 1-5; figures 1,2 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. ° Special categories of cited documents : "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance invention earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to filing date document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 0 3. 05, 00 11 April 2000 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016 Vlassis, M

2

Inte onal Application No
PCT/EP 99/07837

Y US 4 229 608 A (CHEN NAI Y, HAAG WERNER 0, 7,13 LAGO RUDOLPH M) 21 October 1980 (1980-10-21) column 5, line 1 - line 33 figure 1	Category °	citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y US 4 197 418 A (LEE WOOYOUNG, YURCHAK 7,13 SERGEI) 8 April 1980 (1980-04-08) column 7, line 59 -column 10, line 28		US 4 229 608 A (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21 October 1980 (1980-10-21) column 5, line 1 - line 33	7,13
	Y	US 4 197 418 A (LEE WOOYOUNG, YURCHAK SERGEI) 8 April 1980 (1980-04-08) column 7, line 59 -column 10, line 28	7,13
l ·			

International application No. PCT/EP99/07837

Box I	Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)	_
This into	ernational search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:	
1.	Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:	
2.	Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:	
3.	Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).	
Box II	Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)	
This Inte	ernational Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:	_
Bas	es Supplemental Sheet sed on the results of the preliminary examination, no adulation ording to PCT Rule 40.2(e).	
1.	As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.	
2.	As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.	
3.	As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:	
4.	No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:	
Remark	on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest. No protest accompanied the payment of additional search fees.	

International application No. PCT/EP99/07837

The International Searching Authority has found that this international application contains several (groups of) inventions as follows:

1. Claims: 1-6, 8-12

Independent claim 1 describes a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers in a fluidized bed reactor. Independent claim 8 contains a reactor for implementing the above-mentioned method. Additional details of the method or the reactor are described in claims 2-6 or 9-12 dependent on claims 1 and 8.

2. Claims: 7, 13

Independent claim 7 relates to the use of treated catalysts or catalyst carriers in the production of polyolefins. Independent claim 13 contains polyolefins produced using treated catalysts or catalyst carriers.

Information on patent family members

Intuinonal Application No
PCT/EP 99/07837

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 4038038	Α	26-07-1977	AR	223804 A	30-09-1981
	••		AU	500862 B	07-06-1979
			AU	2026276 A	08-06-1978
			BR	7702258 A	08-08-1978
			CA	1082428 A	29-07-1980
			DE	2657601 A	17-11-1977
			FI	763639 A,B,	08-11-1977
			FR	2350139 A	02-12-1977
			GB	1535797 A	13-12-1978
			IT	1123099 B	30-04-1986
			JP	52136202 A	14-11-1977
			MX	157158 A	31-10-1988
		·	NL	7614611 A	09-11-1977
			SE	436695 B	21-01-1989
			SE	7614674 A	08-11-1977
			TR	19380 A	20-02-1979
			YU 	317576 A	28-02-198:
US 4518750	Α	21-05-1985	IT	1150650 B	17-12-1986
			AT	15773 T	15-10-198
			AU	566343 B	15-10-1987
			AU	1207483 A	15-09-1983
			CA	11 9 8582 A	31-12-198
			EP	0088638 A	14-09-198
			JP	1724740 C	24-12-199
			JP	4005488 B	31-01-199
			JP	58216735 A	16-12-198
EP 0101893	 А	07-03-1984	DE	3227932 A	02-02-198
			JP	59042039 A	08-03-198
US 4229608	 А	21-10-1980	BR	7908261 A	23-09-198
05 4EE5000	••	21 10 1300	DE	2949169 A	26-06-1986
			NZ	192047 A	13-07-198
			ZA	7906290 A	24-06-198
		08-04-1980	AU	535722 B	05-04-198
US 4197418	Α	00-04-1900	AU	5604280 A	04-09-198
				534938 B	23-02-198
			AU	534938 B 5604380 A	04-09-198
			AU BR		04-09-198
				8001261 A	11-11-198
			BR	8001353 A	08-02-198
			CA	1140882 A 1140883 A	08-02-198 08-02-198
			CA		
			EP	0015715 A	17-09-198
			EP	0015716 A	17-09-198
			JP	1576676 C	24-08-199
			JP	2003437 B	23-01-199
			JP	55118422 A	11-09-198
			JP	1487759 C	23-03-198
			JP	55144088 A	10-11-198
			JP	63038392 B	29-07-198
			NZ	193023 A	15-12-198
			NZ	193024 A	23-03-198
			ZA	8001187 A	25-02-198
			ZA	8001188 A	25-02-198

		l
		•
		•1
		•
		•
		{

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

onales Aktenzeichen

PCT/EP 99/07837 . KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES PK 7 B01J8/24 B01J8/00 B01J8/18 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) B01J C08F Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. Kategorie® 1-3,5,6,US 4 038 038 A (BUNN DORRANCE P, STRICKLAND X JOHN C, MACLEAN JOHN P, MAY DOUGLAS H JR) 8-10,12 26. Juli 1977 (1977-07-26) Spalte 1, Zeile 60 -Spalte 5, Zeile 55 7,13 Abbildung 1 US 4 518 750 A (GOVONI GABRIELE ET AL) 1,8-10X 21. Mai 1985 (1985-05-21) Spalte 4, Zeile 1 - Zeile 27 Abbildung 1 EP 0 101 893 A (BASF AG) 1,8-10Α 7. März 1984 (1984-03-07) Seite 3, Zeile 29 -Seite 4, Zeile 12 Ansprüche 1-5; Abbildungen 1,2 Siehe Anhang Patentfamilie Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu X Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit berühend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategone in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

11. April 2000

03.05.00

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016

Vlassis, M

Bevollmächtigter Bediensteter

2

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter onales Aktenzeichen
PCT/EP 99/07837

C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	·
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 4 229 608 A (CHEN NAI Y, HAAG WERNER O, LAGO RUDOLPH M) 21. Oktober 1980 (1980-10-21) Spalte 5, Zeile 1 - Zeile 33 Abbildung 1	7,13
Y	Abbildung 1 US 4 197 418 A (LEE WOOYOUNG, YURCHAK SERGEI) 8. April 1980 (1980-04-08) Spalte 7, Zeile 59 -Spalte 10, Zeile 28 Ansprüche 1,2,7; Abbildung 1	7,13

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/07837

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

F	eld l	Bemerkungen zu den Anspruchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen naben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)
	Gemäß /	Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:
1		Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2	2.	Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
;	з. 🔲	Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.
	Feld II	Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)
	Die inter	rnationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:
		siehe Zusatzblatt
		Aufgrund des Ergebnisses der vorläufigen Überprüfung gemäss Regel 40.2(e) PCT sind keine zusätzlichen Gebühren zu erstatten.
	1. X	Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
	2.	Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
	3.	Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
	4.	Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
	Bemer	rkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-6,8-12

Im unabhängigen Anspruch 1 wird ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern in einem Wirbelschichtreaktor beschrieben. Der unabhängige Anspruch 8 enthält ein Reaktor zur Durchführung des o.g. Verfahrens. In den von Ansprüchen 1 und 8 abhängigen Ansprüche 2-6, bzw. 9-12 werden weitere Details des Verfahrens, bzw. des Reaktors beschrieben.

2. Ansprüche: 7,13

Der unabhängige Anspruch 7 bezieht sich auf die Verwendung von behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträgern zur Herstellung von Polyolefinen. Der unabhängige Anspruch 13 enthält Polyolefine hergestellt mittels behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträgern.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inter nales Aktenzeichen
PCT/EP 99/07837

Im Recherchenberich ngeführtes Patentdokur	nent	Datum der Veröffentlichung	P	glied(er) der atenttamilie	Veröffentlichung
US 4038038	Α	26-07-1977	AR	223804 A	30-09-1981
			AU	500862 B	07-06-1979
•			AU	2026276 A	08-06-1978
			BR	7702258 A	08-08-1978
			CA	1082428 A	29-07-1980
			DE	2657601 A	17-11-1977
			FΙ	763639 A,B,	08-11-1977
			FR	2350139 A	02-12-1977
			GB	1535797 A	13-12-1978
			ΙŢ	1123099 B	30-04-1986
			JP	52136202 A	14-11-1977
			MX	157158 A	31-10-1988
		•	NL	7614611 A	09-11-1977
			SE	436695 B	21-01-1985
			SE	7614674 A	08-11-1977
			TR	19380 A	20-02-1979 28-02-1983
	_		YU 	317576 A	
US 4518750	Α	21-05-1985	IT	1150650 B	17-12-1986
			AT	15773 T	15-10-1985
			AU	566343 B	15-10-1987
			AU	1207483 A 1198582 A	15-09-1983 31-12-1985
			CA EP	0088638 A	14-09-1983
			JP	1724740 C	24-12-1992
			JP	4005488 B	31-01-1992
			JP	58216735 A	16-12-1983
EP 0101893	 A	 07-03-1984	DE	3227932 A	02-02-1984
2, 0101050			JP	59042039 A	08-03-1984
US 4229608	Α.	21-10-1980	BR	7908261 A	23-09-1980
			DE	2949169 A	26-06-1980
			NZ	192047 A	13-07-1981
			ZA 	7906290 A	24-06-1981
US 4197418	Α	08-04-1980	AU	535722 B	05-04-1984
			AU	5604280 A	04-09-1980
			AU	534938 B	23-02-1984
			AU	5604380 A	04-09-1980
			BR	8001261 A	04-11-1980
			BR	8001353 A	11-11-1980
			CA	1140882 A 1140883 A	08-02-1983 08-02-1983
			CA EP	0015715 A	17-09-1980
			EP	0015715 A 0015716 A	17-09-1980
			JP	1576676 C	24-08-1990
			JP	2003437 B	23-01-1990
			JP	55118422 A	11-09-1980
			JP	1487759 C	23-03-1989
			JP	55144088 A	10-11-1980
			JP	63038392 B	29-07-1988
			NZ	193023 A	15-12-1981
			NZ	193024 A	23-03-1982
			ZA	8001187 A	25-02-1981
			ZA	8001188 A	25-02-1981

. ::

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7:

B01J 8/00

A2

- (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/21655
- (43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

LU, MC, NL, PT, SE).

20. April 2000 (20.04.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/07837

- (22) Internationales Anmeldedatum: 15. Oktober 1999 (15.10.99)
- (30) Prioritätsdaten:

198 47-647.7

15. Oktober 1998 (15.10.98)

Veröffentlicht DE

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

(81) Bestimmungsstaaten: CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,

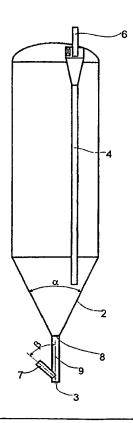
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): ELENAC GMBH [DE/DE]; D-77694 Kehl (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): DE LANGE, Paulus Hermann-Loens-Weg 5, D-67117 Limburgerhof (DE).⇒SCHÖNFELDER, Hendrik [DE/DE]; D-68159 Mannheim (DE). KÄMMERER, Michael [DE/DE]; Kastanienweg 38, D-50389 Wesseling (DE). SIEBENHANDL, Hans, Wemer [DE/DE]; Am Kuckucksbusch 1, D-53913 Swisttal (DE). • EVERTZ, Kaspar [DE/DE]; Stettiner Strasse 13, D-67105 Schifferstadt (DE). & WIETFELDT-HALTENHOFF, Stefan IDE/DEI: Paul-Klee-Strasse 48, D-50374 Erftstadt (DE). WERTHER, Joachim [DE/DE]; Tostedter Weg 39, D-21244 Buchholz (DE).
- (54) Title: FLUIDIZED BED METHOD AND REACTOR FOR THE TREATMENT OF CATALYSTS AND CATALYST CARRIERS
- (54) Bezeichnung: WIRBELSCHICHTVERFAHREN UND REAKTOR ZUR BEHANDLUNG VON KATALYSATOREN UND KATALYSATORTRÄGERN

(57) Abstract

The invention relates to a method for the treatment of catalysts or catalyst carriers by: a) introducing and distributing a gas in the lower section of a reactor containing a catalyst or catalyst carrier bulk material; b) forming a fluidized bed in the reactor; c) treating the particles in the fluidized bed while removing the fine particles and/or retaining the coarse particles by means of a separating organ and (d) discharging the reactor. To this end, a reactor bottom tapering downwards is used.

(57) Zusammenfassung

Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch: a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors; b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor, c) Behandlung der Partikeln in der Wirbelschicht, dabei Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln durch ein Abscheideorgan; und d) Entladung des Reaktors. Dabei wird ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

					•		
\mathbf{AL}	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
\mathbf{AU}	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
B.I	Benin	Œ	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	\mathbf{n}	Israel	MR	Mauretanien	\mathbf{UG}	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UΖ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
СН	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	$\mathbf{z}\mathbf{w}$	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	\mathbf{PL}	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

5

Wirbelschichtverfahren und Reaktor zur Behandlung von Katalysatoren und Katalysatorträgern

10

Die Erfindung betrifft ein Wirbelschichtverfahren, einen Reaktor zur Behandlung von Katalysatoren und Katalysatorträgern und die Verwendung der Verfahrensprodukte bei der Polyolefinherstellung.

15

20

25

Wenn auf perforieren Böden lagerndes feinkörniges Schüttgut von unten von Gasen durchströmt wird, stellt sich unter bestimmten Strömungsbedingungen ein Zustand ein, der dem einer kochenden Flüssigkeit ähnelt - die Schicht wirft Blasen auf, und die Teilchen des Schüttgutes befinden sich innerhalb der Schicht in einer ständigen, wirbelnden Auf- und Abbewegung und bleiben so gewissermaßen in der Schwebe. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von Fließbett, Wirbelbett oder Wirbelschicht. Ein solcher Zustand entsteht, wenn ein bestimmter Grenzwert der Geschwindigkeit des von unten durchströmenden Gases gegen die Schwerkraft des Festteilchen erreicht wird. Dieser Punkt, an dem die ruhende in eine wirbelnde Schicht, das Festbett in eine Wirbelschicht übergeht, wird als Lockerungs- oder Wirbelpunkt bezeichnet. Das Erreichen dieses Punktes hängt von einer Reihe physikalischer Faktoren ab; diese sind z.B. Dichte, Größe, Verteilung und Form der Teilchen und Eigenschaften des Wirbelfluids.

30

Die Wirbelschicht kann wie eine Flüssigkeit durch Öffnungen ausströmen, durch Rohre befördert werden, oder auf geneigter Unterlage, z.B. einer Förderrinne, abfließen. Bei weiterer Erhöhung der Geschwindigkeit des Wirbelfluids expandiert die Schicht immer stärker und es bilden sich Blasen. Oberhalb einer Grenzgeschwindigkeit werden die Teilchen als Flugstaub aus dem Behälter

hinausgetragen, können aber in einem nachgeschalteten Abscheideorgan wieder vom Gasstrom separiert und dem Reaktor zugeführt werden.

Ein zweckmäßiges Abscheideorgan ist ein sogenannter Zyklon. Bei einem solchen Zyklon erfolgt die Abscheidung der Partikeln mit Hilfe der Zentrifugalkraft. Zyklone bestehen im Prinzip aus einem zylindrischen Gefäß mit konisch zulaufendem Boden, in das im oberen Bereich ein Staubluft-Eintrittsrohr tangential und ein Reinluft-Austrittsrohr vertikal hineinragen. Der tangential eintretende Gas/Staub-Strom induziert eine Wirbelströmung, wobei die gröberen Staubteilchen durch die Zentrifugalkraft an die Wand des Zylinders geschleudert werden und von dort durch die Schwerkraft zu Boden sinken, von wo sie ausgetragen werden können. Der kreisende, vom Staub befreite Gaswirbel kehrt am Boden des Zyklons seine Richtung um und verläßt den Zyklon nach oben durch das Austrittsrohr zusammen mit eventuell feineren Partikeln, denn das Trennprinzip reicht nicht aus, um Feinstaub-Verunreinigungen vollständig zu beseitigen. Zyklone werden in der Technik vorwiegend zur Entstaubung eingesetzt.

10

15

20

Zyklone sind bei vielen Wirbelschichtverfahren eine wichtige Komponente. Wirbelschichtverfahren werden für eine große Anzahl von technischen Prozessen angewendet. Dabei kann der Feststoff der Wirbelschicht z.B. entweder als Katalysator (Fließbett-Katalysator) oder als Wärmeübertragungsmittel wirken, oder dieser kann selbst an der Reaktion teilnehmen. Wichtige Prozesse, die als Wirbelschichtverfahren ausgeführt werden sind:

Gasphasenpolymerisation, Kohleverbrennung, Kohleverflüssigung und Fischer-Tropsch-Synthese, katalytisches Cracken von Kohlenwasserstoffen, Rösten sulfidischer Erze, Kalzinieren von Tonerdehydrat, Kalkbrennen, Entschwefelung von Gasen, katalytische Dehydrierung benzinreicher Naphten-Fraktionen, Destillation von Öl aus bituminösem Sand, Oxidation von Naphthalin zu Phthalsäureanhydrid an Vanadiumoxid, Beseitigung von Fluor bei der Phosphat-Gewinnung, Herstellung von Acrylnitril, Dichlorethan, CCI4, TiCI4, Trocknung von Braunkohle und Granulaten (z.B. aus PVC, Salpeter, Kalisalzen, Holzmehl,

WO 00/21655 PCT/EP99/07837

Kochsalz, Farben, pharmazeutischen Präparaten, Insektiziden, selbst Mikroorganismen), aromaschonende Trocknung oder Röstung von Nahrungs- und Genußmitteln (Bohnenkaffee, Kakao, Erdnüssen, Getreideprodukten, Maisstärke, Reis, Tee und vielen anderen), die Verbrennung von Abfällen, Müll, Sondermüll und Klärschlamm, oder physikalische Vorgänge wie die Abtrennung von kleinen Teilchen oder Mischen.

Im folgenden sollen Wirbelschichtverfahren zur Behandlung von Katalysatoren, Initiatoren, Katalysatorträgern, Initiatorträgern und von mit Initiatoren oder Katalysatoren behandelten Trägermaterialien betrachtet werden. Obwohl streng definitionsgemäß zwischen Initiatoren und Katalysatoren differenziert werden muß, sind nachstehend unter Katalysatoren auch Initiatoren zu verstehen (häufig ist nur schwer erkennbar, ob eine Reaktion initiert oder katalysiert wird). Entsprechend werden im folgenden mit aktiven Komponenten - zum Beispiel Katalysatoren - behandelte Trägermaterialien auch als Katalysatoren bezeichnet.

Zur Behandlung von Katalysatorträgern oder Katalysatoren (zum Beispiel für deren Einsatz in der Olefinpolymerisation), werden Wirbelschichtreaktoren verwendet, bei denen die Partikeln durch einen nach oben gerichteten Gasstrom bewegt werden, mit dem diese in intensivem Stoff- und Wärmeaustausch stehen. Im zeitlichen Verlauf des Prozesses werden die Partikeln aufgeheizt und unterliegen einer physikalisch/chemischen Veränderung. Nach Beendigung der Umwandlung werden die Partikeln abgekühlt und aus dem Reaktor entladen. Besondere Aufmerksamkeit legt man bei der Gestaltung der Reaktoren auf die:

25

5

10

15

20

- A) Gasverteilung am Eintritt
- B) Abscheidung von feinen Partikeln aus dem Gasstrom, der den Reaktor verläßt
- C) Entladevorrichtung

zu A) (Gasverteilung)

5

10

15

20

25

Zur Verteilung des Gases werden flache, gewölbte oder geneigte Bleche in den unteren Bereich des Reaktors eingesetzt, wobei die Bleche mit verschiedenartigen Durchlässen für das Gas versehen sind. Diese Durchlässe sind im einfachsten Fall Bohrungen, können aber auch geeignete Einsätze sein, z.B. Glocken oder Schrauben. Zur zuverlässig gleichmäßigen Verteilung des Gases benötigt ein solcher Gasverteilerboden einen Druckverlust zwischen mindestens 10 und 20 mbar. Eine vorteilhafte Verteilung des Gases kann dadurch behindert werden, daß die Durchlässe für das Gas durch die Partikeln verstopfen.

Bei manchen Schüttungen, bestehend aus Partikeln bestimmter Materialien und Größe, wird bei der Einleitung von Gas in einen der beschriebenen Reaktoren das Phänomen der Kanalbildung beobachtet. Dabei bildet sich keine Wirbelschicht aus, sondern das Gas strömt durch die Durchlässe des Blechs senkrecht nach oben durch die Schüttung hindurch. Auch bei Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit des Gases verharren dann die Partikeln in der Schüttung.

Die Verteilung des Gases spielt auch bei der Behandlung von Partikeln mit Flüssigkeiten, die in die Wirbelschicht eingesprüht werden, ein Rolle. Diese Flüssigkeiten können z.B. als Binder für die Partikeln fungieren, welche so agglomerieren und während des Trocknens größere Agglomerate bilden. Eine optimale Verteilung der eingesprühten Flüssigkeit durch das Wirbelgas ist entscheidend, um einerseits die Agglomeration fester Teilchen und andererseits die Belagbildung an den Reaktorwänden durch Anlagerung von Feststoff zu vermeiden [Daizo Kunii, Octave Levenspiel, "Fluidization Engineering", Verlag Butterworth-Heinemann (Stoneham), zweite Auflage (1991), Seite 24].

5

10

15

zu B) (Abscheidung)

Am Auslaß des Reaktors wird das Gas über ein geeignetes Abscheideorgan geführt, mit dem man mitgerissene Partikeln abtrennt, um diese im Reaktor zu halten. Solche Abscheideorgane können Filterelemente sein, die direkt in den Reaktionsraum eingehängt werden. Der Nachteil dieser Filterelemente besteht darin, daß diese verstopfen und deshalb regelmäßig gereinigt oder ausgewechselt werden müssen. Vorteilhaft ist der Einsatz von einem Zyklonabscheider, der im wesentlichen wartungsfrei ist und im Gegensatz zu einem Filter die Fähigkeit hat, sehr feine Partikeln aus dem Reaktor herauszulassen und gröbere Partikeln zuverlässig zurückzuhalten. Diese Eigenschaft kann sich positiv auf die Qualität des erzeugten Wirbelgutes auswirken, da sehr feine Partikeln in einer späteren Anwendung oft unerwünscht sind. Kleinste Katalysatorteilchen können beispielsweise bei späteren Polymerisationen unerwünschte sogenannte hot-spots hervorrufen.

Zu C) (Entladen)

20

25

30

Katalysator oder Katalysatorträger werden nach Abschluß der Behandlung über geeignet zu sperrende Ventile aus dem Reaktor entladen. Die Öffnungen sind dabei in den Boden eingelassen, um den Anteil der im Reaktor verbleibenden Partikeln zu minimieren. Notwendigerweise müssen Katalysator oder Katalysatorträger beim Entladevorgang die Durchlässe des Gasverteilerbodens passieren. Dabei sollte das Gas weiter durch den Boden strömen können, um die Beweglichkeit der Partikeln sicherzustellen (letztere "rutschen" nicht selbständig zum Auslaß, so daß die Benutzung des Wirbelgases während der Entleerung notwendig ist). Der Einsatz von Wirbelgas während der Entleerung behindert jedoch die vorteilhafte Verwendung eines Zyklonabscheiders:

Während des Entleerens sinkt der Stand des Wirbelbettes bis unterhalb des Ablaufrohrendes des Zyklons, und aufgrund der dadurch entstehenden Kurzschlußgase wird die Abscheideleistung des Zyklons stark herabgesetzt, so daß auch gröbere Partikeln aus dem Reaktor herausgetragen werden. Dies führt zwangsläufig zu Materialverlust.

Ein weiterer Nachteil besteht darin, daß vorstehend beschriebene Reaktoren nicht vollständig entleert werden können, da auf den Böden stets Material verbleibt. Die Rückstände werden zusammen mit frischen Partikeln einem zweiten Durchgang unterworfen, so daß Material erzeugt wird, das unterschiedliche Verweilzeiten aufweist. Solches ist in der Regel von ungleichmäßiger, meist schlechterer Qualität als Material, das einheitliche Verweilzeiten aufweist.

Der Erfindung liegt deshalb die Aufgabe zugrunde, das vorstehend beschriebene Wirbelschichtverfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern so zu verbessern, daß keine Kanalbildung erfolgt, eine vorteilhafte Anwendung eines Zyklons möglich ist und eine zügige und zumindest nahezu vollständige, d.h. rückstandsfreie Entladung des Reaktors erfolgt.

- 20 Die Lösung dieser Aufgabe ist dann ein Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch
 - a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysatoroder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
- 25 b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - Behandlung der Katalysator- oder Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
 - d) Entladung des Reaktors,

5

10

30 wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden eingesetzt wird.

In einer bevorzugten Ausführungsform wird zur Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein Abscheideorgan eingesetzt.

Erfindungsgemäß wird auch eine Vorrichtung zur Durchführung dieses letzteren 5 Verfahrens bereitgestellt, wobei diese folgende Einrichtungen enthält:

- i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden,
- ii) ein unterhalb des Reaktorbodens befindliches Rohr zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang verbunden ist,
- iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors und
- iv) ein oder mehrere Abscheideorgane.

10

Die erfinderische Lösung, für die Gasverteilung beim zugrundeliegenden Wirbel-15 schichtverfahren einen sich nach unten verjüngenden Reaktorboden bereitzustellen, beruht vermutlich darauf, daß überraschenderweise die zu behandelnden Partikeln bei dem Verfahren kaum beschädigt oder desaktiviert werden. Mit sich nach unten verjüngenden Reaktorböden sind solche gemeint, deren Querschnittsfläche sich nach unten reduziert. Prinzipiell kommen symmetrische und unsymmetrische Formen in 20 Frage. Geeignet ist zum Beispiel ein Pyramidenstumpf, insbesondere aber ein Kegelstumpf - also ein konisch ausgebildeter Reaktorboden. Bei Verwendung dieser sich nach unten verjüngenden Reaktorböden liegt neben der Wirbelschicht stets eine im unteren Bereich des Bodens befindliche, die Mantelinnenseite umgebende Schüttung vor. In dieser findet laufend ein Austausch von Material statt, wobei 25 Partikeln der Wirbelschicht auf die Schüttung gelangen und andererseits durch "Abrutschen" von Partikeln in den Gaseinleitungsbereich Material aus der Schüttung abgeführt und der Wirbelschicht wieder zugeführt wird. Durch die Wärmeübertragung von der Reaktorwand auf die Schüttung können in letzterer unerwünscht hohe Temperaturen auftreten. Mögliche Folgen wären z.B. Desaktivierung des 30 Katalysators oder Sintervorgänge, durch die Agglomerate entstehen und/oder die Poren des Katalysators oder des Katalysatorträgers verstopfen.

WO 00/21655 PCT/EP99/07837

Diese Nachteile treten bei dem erfindungsgemäßen Verfahren nicht oder kaum auf möglicherweise deshalb, da sich die Katalysator-Partikeln nur sehr kurzzeitig in der Schüttung aufhalten.

5

Vorteilhaft wirkt sich die Schüttung dadurch aus, daß Kanalbildung verhindert wird (das laufende Abrutschen von Partikeln an der Mantelwandung würde jeden "Kanal" sofort verschließen). Außerdem begünstigt die Schüttung aufgrund ihrer kegelförmigen Struktur die gleichmäßige Verteilung des Wirbelgases.

10

15

20

25

30

In der anliegenden Zeichnung sind dargestellt, in Fig. 1 ein Gasverteilerboden 1, eine Vorrichtung zur Entladung des Reaktors 3, Filterelemente 5, ein Gasauslaß 6, ein Gaseingang 7 und in Fig. 2 ein Reaktorboden 2, eine Vorrichtung zur Entladung des Reaktors 3, ein Zyklon 4, ein Gasauslaß 6, eine Gaseingang 7, ein Konusstumpf 8, ein Rohr zur Gaseinleitung in den Reaktor 9 ein Konuswinkel α und ein Winkel β .

Da der erfindungsgemäße Reaktor (Fig. 2) im Gegensatz zu dem bisher überlicherweise verwendeten Reaktortyp (Fig.1) keinen Gasverteilerboden 1 aufweist, entfällt einerseits der Druckverlust, der damit verbunden wäre, und andererseits vereinfacht sich die Entleerung des Reaktors, die ohne die Aufstellung von Wirbelgas erfolgt. Der konisch ausgebildete Reaktorboden 2 ermöglicht es, Katalysator bzw. Katalysatorträger mit größerer Effizienz aus dem Reaktor auszuschleusen, da dieser an der Wandung abrutscht und vollständig oder nahezu vollständig zur Entladevorrichtung 3 gelangt, ohne größere Rückstände im Reaktor zu hinterlassen. Die Entladung des Reaktors kann somit rückstandsfrei oder nahezu rückstandsfrei (d.h. zu mindestens 99%, bevorzugt zu mindestens 99,5% erfolgen). Es ist vorteilhaft, wenn der konische Reaktorboden 2 des Reaktors einen zwischen beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° bis 120°, bevorzugt von 30° bis 80° aufweist. Die Enladevorrichtung 3 (zum Beispiel ein Rohr) befindet sich in der Regel am unteren Ende des Rohrs 9, das zur Gaseinleitung in den Reaktor dient. Damit erfüllt auch das Rohr 9 teilweise eine Funktion zur

Enladung des Reaktors. Die Entladung erfolgt in der Regel deutlich schneller als bei entsprechenden Reaktoren, die einen Gasverteilerboden 1 aufweisen.

Zur Abscheidung mitgerissener Partikeln kann der Kopf des Reaktors eine Querschnittserweiterung aufweisen. Zusätzliche Abscheideorgane können insbesondere im Bereich dieser Erweiterung angebracht werden.

5

10

15

20

25

30

Ein weiterer wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktors ist, daß als Abscheideorgan vorteilhaft ein Zyklon 4 verwendet werden kann, d.h., daß ohne Materialverlust beim Entleeren des Reaktors in Kauf nehmen zu müssen, ein effektiver und zuverlässiger Feingutaustrag ermöglicht wird. Die Nachteile der beim bisher üblicherweise verwendeten Verfahren eingesetzten Filterelemente 5, die sich unterhalb des Gasauslasses 6 befinden, sind einleitend beschrieben worden. Das verwendete Abscheideorgan dient in jedem Fall dazu, feinere Partikeln zu entfernen und/oder gröbere zurückzuhalten.

Von Bedeutung ist auch die Einführung des Trägergases am Gaseingang 7. Da bei der Be- und Entladung möglichst keine Partikeln in den Gaseingang 7 gelangen sollen, sollte das entsprechende Einlaßrohr nach oben geneigt sein. Der Winkel β , der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs 7 und der Vertikalen nach oben gemessen wird, beträgt insbesondere 20° bis 70°, bevorzugt 30° bis 60°.

Die im erfindungsgemäßen Verfahren behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträger werden insbesondere bei der Olefinpolymerisation eingesetzt, wobei die zu behandelnden Partikeln in der Regel in Form von festen Partikeln dem Reaktor zugeführt werden. Solche Polyolefin-Katalysatoren enthalten häufig dotierte Trägermaterialien (zum Beispiel auf der Basis von Kieselgel). Als Aktivkomponenten dienen dabei zum Beispiel Übergangsmetalle wie Chrom oder Titan. Trägermaterialien können beispielsweise oxidische Verbindungen, wie Silika, Alumina, Silika-Alumina, Zirkonia, Thoria, fluoriertes Silika, fluoriertes Alumina, fluoriertes Silika-Alumina, Boroxide oder deren Mischungen sein. Eine

PCT/EP99/07837 WO 00/21655 - 10 -

zusätzliche Oberflächenmodifikation der Trägermaterialien kann besonders vorteilhaft sein. Die Behandlung der Katalysatoren oder der Katalysatorträger ist in der Regel eine Kalzinierung und/oder Aktivierung.

Während der Behandlung können neben dem durch den Gaseingang 7 eingeführten Trägergas (Wirbelgas) auch zusätzliche Gase und neben den ursprünglich vorgelegten Partikeln auch zusätzlicher Feststoff mit in die Wirbelschicht eingebracht werden. Diese Einbringung kann zu jedem Zeitpunkt des Prozesses und durch an beliebigen Orten angebrachte Zufuhrstellen erfolgen. Als zusätzliche Gase kommen beispielsweise Sauerstoff, Kohlendioxid oder Wasserdampf in Frage, während als zusätzliche Feststoffe beispielsweise Ammoniumhexafluorosilikat, unbehandelter Katalysatorträger oder Katalysatoren anderer physikalisch/chemischer Struktur eingesetzt werden können. Außerdem können auch Flüssigkeiten, beispielsweise Wasser, in die Wirbelschicht eingesprüht werden. Somit können Flüssigkeiten, zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase mit in 15 den Reaktor eingebracht werden.

Im folgenden wird die Behandlung gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren anhand von Ausführungsbeispielen näher beschrieben.

20

25

30

10

Beispiel 1 (Kalzinierung)

In einem Reaktor aus Stahl mit einer Gesamthöhe von 4 m, 0,3 m Durchmesser (zylindrisch), einem Konuswinkel von 45° und einem lichten Durchmesser des am Konusstumpf 8 angebrachten Rohres 9 von 25 mm wurden 25 kg Katalysatorträger mit einem Schüttgewicht von 450 kg/m³ und einer Partikelgrößenverteilung gemäß Tabelle 1 behandelt. Dabei wurde der Reaktor über 6 Stunden von Umgebungstemperatur auf 600°C aufgeheizt, wobei N₂ als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Reaktor 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei zwischen 4 cm/s und 8 cm/s. Nach dem Ende des Vorgangs wurde das Wirbelgas abgestellt und der Katalysatorträger abgelassen. Nach dem Entleerungsvorgang verblieben ca. 0,05 kg Katalysatorträger (d.h. ca. 0,2%) im Reaktor, der an der Wandung als Staubbelag anhaftete.

5

Tabelle 1

Materialeigenschaften des Kieselgels ES70X®

Test	
Porenvolumen	1.69 cc/g
Oberfläche	320 m ² /g
flüchtige Anteile	7.0 %
Soda (als Na ₂ O)	500 ppm
Schüttdichte	300 g/l

10

Partikelgrößenverteilung des Kieselgels ES70X® (Hersteller Crosfield Catalysts) vor und nach der Kalzinierung

Material	Behandlung	Median µm	< 20,2 µm	< 32 µm	> 80,7µm
ES70X® (Silikat mit ca. 99,3% SiO ₂)	unbehandelt	40.0	1.0	18.5	0.2
	10 h ausheizen bei 600 °C und N ₂	40.5	1.1	19.1	0.1

15

25

(Meßmethode: Coulter Counter, Vorbehandlung: 30 sec Ultraschall, Elektrolyt: 49.5 % Wasser, 49.5 % Glycerin, 1% NaCl, Kapillare: 560 µm, Betriebsart: manuell)

20 Beispiel 2 (Aktivierung)

In einem Reaktor aus Stahl mit einer Gesamthöhe von 5 m, 0,6 m Durchmesser (zylindrisch), einem Konuswinkel von 45° und einem lichten Durchmesser des am Konusstumpf 8 angebrachten Rohres 9 von 51 mm wurden 200 kg Katalysator mit einem Schüttgewicht von 420 kg/m³ und einer Partikelgrößenverteilung gemäß

Tabelle 2 aktiviert. Dabei wurde der Apparat über 10 Stunden von Umgebungstemperatur auf 705°C aufgeheizt, wobei Luft als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Apparat für 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Während der Abkühlphase wurde auf Stickstoff als Wirbelgas umgestellt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei 5 cm/s – 10 cm/s. Nach dem Ende des Vorgangs wurde das Wirbelgas abgestellt und der Katalysator abgelassen. Nach dem Entleerungsvorgang verblieben ca. 0,1 kg Katalysator (d.h. etwa 0,05%) im Reaktor.

10

15

20

25

Vergleichsbeispiel V2 (Aktivierung)

In einem Reaktor mit 5,5 m Gesamthöhe, einem Durchmesser von 0,6 m und einem horizontalen Gasverteilerboden mit zylindrischen Bohrungen (Lochblech), wurden 125 kg Katalysator des Typs aus Beispiel 2 aktiviert. Dabei wurde der Apparat 10 Stunden von Umgebungstemperatur auf 705°C aufgeheizt, wobei Luft als Wirbelgas benutzt wurde. Anschließend wurde der Apparat für 10 Stunden auf dieser Temperatur gehalten und danach abgekühlt. Während der Abkühlphase wurde auf Stickstoff als Wirbelgas umgestellt. Die auf das leere Rohr bezogene Geschwindigkeit im zylindrischen Reaktorteil betrug dabei 5 cm/s – 10 cm/s. Nach dem Ende des Vorgangs wurde der Katalysator über ein zentral angebrachtes Auslaßrohr abgelassen. Nach dem Entleervorgang verblieben 5,2 kg (d.h. etwa 4%) auf dem Verteilerboden.

Tabelle 2

Materialeigenschaften des Katalysators Sylopol 969 IDW®

Test	Kaufware	nach der Aktivierung
Porenvolumen cc/g	1.24	1.24
Oberfläche m²/g	316	nicht bestimmt
flüchtige Anteile, %	6.1	nicht bestimmt
Na ₂ O, %	0.08	nicht bestimmt

Test	Kaufware	nach der Aktivierung
Schüttdichte, g/l	nicht bestimmt	329

Partikelgrößenverteilung des Katalysators Sylopol 969 IDW® (Hersteller Grace GmbH) vor und nach der Aktivierung.

5

Material	Behandlung	Median um	< 20,2 µm	< 32 µm	> 80,7µm
Sylopol 969 IDW® (Silikat mit ca. 98% SiO ₂ und ca. 1% Cr)	unbehandelt	56.2	0.8	8.3	14.1
·	10 h ausheizen bei 705 °C	51.5	0.8	9.0	5.8

(Meßmethode: Coulter Counter, Vorbehandlung: 30 sec Ultraschall, Elektrolyt: 49.5 % Wasser, 49.5 % Glycerin, 1% NaCl, Kapillare: 560 µm, Betriebsart: manuell)

5

25

Patentansprüche

- 1. Verfahren zur Behandlung von Katalysatoren oder Katalysatorträgern durch
- a) Einleitung und Verteilung von Gas in den unteren Bereich eines Katalysator- oder Katalysatorträger-Schüttgut enthaltenden Reaktors,
 - b) Ausbildung einer Wirbelschicht im Reaktor,
 - c) Behandlung der Katalysator- oder der Katalysatorträger-Partikeln in der Wirbelschicht und
- d) Entladung des Reaktors,

wobei ein sich nach unten verjüngender Reaktorboden (2) eingesetzt wird.

- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zur
 Entfernung feinerer und/oder Zurückhaltung gröberer Partikeln ein oder mehrere Abscheideorgane eingesetzt werden.
 - 3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheideorgan(e) ein oder mehrere Zyklone (4) verwendet werden.
 - 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Entladung des Reaktors (Stufe d) rückstandsfrei oder nahezu rückstandsfrei erfolgt.
- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Behandlung des Katalysators oder des Katalysatorträgers (Stufe c) eine Aktivierung und/oder eine Kalzinierung ist.

- Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß
 auch Flüssigkeiten und/oder zusätzliche Feststoffe und/oder zusätzliche Gase in
 die Wirbelschicht eingebracht werden.
- 5 7. Verwendung der in dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6 behandelten Katalysatoren oder Katalysatorträger zur Herstellung von Polyolefinen.
- 8. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 2 bis 6, enthaltend folgende Einrichtungen:
 - i) einen Reaktormantel mit einem sich nach unten verjüngenden, bevorzugt konisch ausgebildeten Reaktorboden (2),
 - ii) ein unterhalb des Reaktorbodens (2) befindliches Rohr (9) zur Gaseinleitung in den Reaktor, das mit einem Gaseinlaßrohr für den Gaseingang (7) verbunden ist,
 - iii) eine unterhalb des Reaktorbodens befindliche Vorrichtung zur Entladung des Reaktors (3) und
 - iv) ein Abscheideorgan.

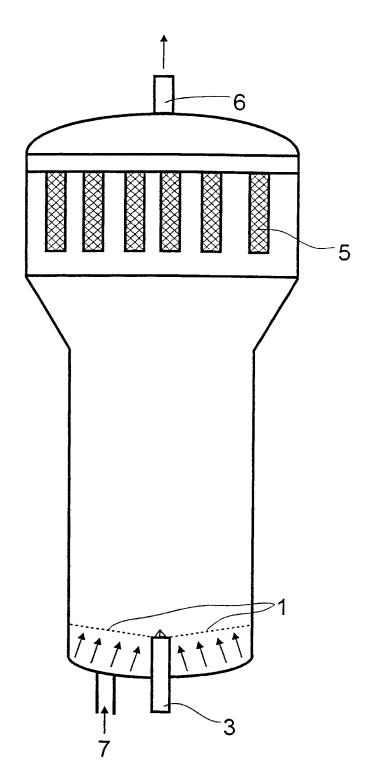
20

15

- 9. Reaktor nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß der sich nach unten verjüngende Reaktorboden (2) konisch ausgebildet ist.
- Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß der konisch ausgebildete Reaktorboden (2) einen zwischen den beiden inneren Mantelflächen gemessenen Konuswinkel α von 10° 120°, bevorzugt von 30° 80° aufweist.
- Reaktor nach einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der
 Winkel β, der zwischen dem Gaseinlaßrohr des Gaseingangs (7) und der
 Vertikalen nach oben gemessen wird, 20° 70°, bevorzugt 30° 60° beträgt.

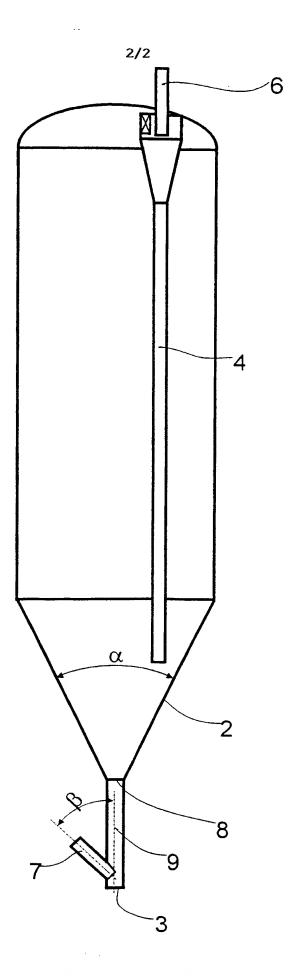
- 12. Reaktor nach einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß als Abscheidorgan ein Zyklon eingesetzt wird.
- 13. Polyolefine hergestellt mittels Katalysatoren oder Katalysatorträgern gemäß
 dem Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6.

FIG.1



			_
			•
			2
			•,
			,
M.			
1			

FIG.2



			,
			.
			•
7			
1			≱ .